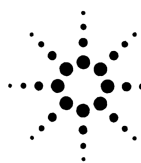


李强, 曹莹, 高存富, 等. 不同酸化体系测定中国不同地区土壤重金属的比较研究[J]. 环境化学, 2020, 39(4): 1153-1157.

LI Qiang, CAO Ying, GAO Cunfu, et al. Comparative study of acidification systems for determination of heavy metals in soils from different areas in China[J]. Environmental Chemistry, 2020, 39(4): 1153-1157.



安捷伦科技 (Agilent)

不同酸化体系测定中国不同地区土壤重金属的比较研究*

李 强 曹 莹** 高存富 刘亚峰 周 密 刘晓雪

(中国环境科学研究院, 环境分析测试技术中心, 北京, 100012)

摘 要 本文采用硝酸-氢氟酸-盐酸-过氧化氢(5:1:1:1)的消解体系和硝酸-过氧化氢(6:2)消解体系, 均通过微波消解法和电感耦合等离子体质谱法(ICP-MS)测定土壤中的铬、镍、铜、锌、砷、镉、铅等 7 种元素, 分析了来自全国不同地区的 9 种土壤与水系沉积物的质控样品, 研究了全量微波消解酸体系对土壤中 7 种重金属测定的影响. 结果表明, 对于 Cr 和 Pb 元素, 硝酸-过氧化氢消解体系可溶态元素的结果显著低于元素全量的结果, 未加入氢氟酸, 难以将硅晶格中的 Cr 和 Pb 析出. 对于 As 元素, 硝酸-氢氟酸-盐酸-过氧化氢消解体系的回收率略有偏高, 推测其原因为盐酸引入的氯离子对 ICP-MS 的测定产生了质谱型干扰, 因此消解体系应尽量避免引入氯. 对于 Ni、Cu 和 Zn 的结果, 硝酸-过氧化氢消解体系的回收率在 75%—110% 的范围, 两种消解体系结果的偏差较小, 硝酸-过氧化氢法测定的可溶态元素的结果可以较好的反映元素全量的水平. 对比不同地区土壤的结果发现, 除水系沉积物和砖红壤中的 Pb 及砖红壤中的 Cr, 土壤中部分 Cr 和 Pb 难以被硝酸-过氧化氢体系消解出来, 在环境中处于稳定的状态, 因此采用硝酸-过氧化氢体系能更准确地评估 Cr 和 Pb 对环境的危害.

关键词 电感耦合等离子体质谱法, 土壤, 微波消解.

Comparative study of acidification systems for determination of heavy metals in soils from different areas in China

LI Qiang CAO Ying** GAO Cunfu LIU Yafeng ZHOU Mi LIU Xiaoxue

(Environmental Analysis and Testing Laboratory of CRAES, Chinese Research Academy of Environmental Sciences, Beijing, 100012, China)

Abstract: In this paper, the digestion system of nitric acid-hydrofluoric acid-hydrochloric acid-hydrogen peroxide (5:1:1:1) and the digestion system of nitric acid-hydrogen peroxide (6:2) were used. Seven elements of chromium, nickel, copper, zinc, arsenic, cadmium and lead in soil were analyzed by microwave digestion and inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS). Nine quality control samples of soil and sediment from different parts of the country were analyzed. The effects of full microwave digestion acid system on the determination of seven heavy metals in soil were studied. The results showed that for Cr and Pb elements, the results of the soluble elements by the nitric acid-hydrogen peroxide method were significantly lower than the results of the total amount of elements by the nitric acid-hydrofluoric acid-hydrochloric acid-hydrogen peroxide method. Without the addition of hydrofluoric acid, it was difficult to dissociate Cr and Pb from the silicon lattice. For As element, the recovery of the nitric acid-hydrofluoric acid-hydrochloric acid-hydrogen peroxide digestion system was slightly higher. It was speculated that the reason was that the chloride ion

* 国家重点研发计划项目(2018YFC1802200, 2019YFC180052)资助.

Supported by the National Key Research and Development Plan (2018YFC1802200, 2019YFC180052).

** 通讯联系人, Tel: 010-84915814, E-mail: caoying@craes.org.cn

Corresponding author, Tel: 010-84915814, E-mail: caoying@craes.org.cn

introduced by hydrochloric acid had caused mass spectrometry interference in the measurement of ICP-MS, so the digestion system should avoid introducing chlorine. For the results of Ni, Cu and Zn, the recovery rate of the nitric acid-hydrogen peroxide digestion system was in the range of 75%—110%. The deviation of the results of the two digestion systems was low. So the results of the soluble element determination by the nitric acid-hydrogen peroxide method could well reflect the level of the total amount of elements. Comparing the results of soils in different regions, it was found that part of Cr and Pb in the soil was difficult to be completely digested by the nitric acid-hydrogen peroxide system and was in a stable state in the environment. This result was not applicable to Pb in sediment and laterite and Cr in laterite. Therefore, the use of the nitric acid-hydrogen peroxide system could more accurately assess the environmental damage of Cr and Pb.

Keywords: inductively coupled plasma mass spectrometry, soil, microwave digestion.

2016年5月国务院印发《土壤污染防治行动计划》(简称“土十条”),总体要求以改善土壤环境质量为核心,以保障农产品质量和人居环境安全为出发点。“土十条”对土壤标准体系和测试方法等提出了新的要求。而我国土壤类型丰富,即使同一土壤类型,不同地块的污染状况也不尽相同,对分析方法的普适性提出了较高的要求。土壤重金属元素检测中,样品的前处理成为土壤/沉积物等复杂基体环境样品分析测定中的主要问题^[1]。其中,前处理所使用的酸体系是影响土壤重金属测定结果准确性的关键步骤,在选用酸消解体系进行元素分析时,应结合试样和待测元素的性质、定量方法等权衡考虑^[2-4]。

参考国际标准化组织 ISO 与美国环境保护署 USEPA 的前处理标准方法,如 ISO16729:2013、USEPA Method 3050B 等。ISO 方法使用硝酸、氢氟酸-硝酸-高氯酸、王水、碱熔法,USEPA 方法使用硝酸-盐酸、硝酸-氢氟酸、硝酸-盐酸-过氧化氢。而参考国内的标准方法,如微波消解法 HJ832、火焰原子吸收法 HJ491、原子荧光法 HJ680、电感耦合等离子体质谱法 HJ766 等。主要使用硝酸-盐酸-氢氟酸-高氯酸体系,对于汞、砷等元素的测定,则使用王水。

对比国内外方法的酸体系可知,国外的标准方法中所使用的硝酸-盐酸等均不是全分解,属于酸可溶态监测,而我国标准方法中使用的硝酸-盐酸-氢氟酸-高氯酸(四酸法),属于全分解监测。由此可见,国外对土壤元素更关注于易于迁移的可溶态部分,我国则注重全量^[4-5]。目前国外大部分国家通过人体健康风险评估法来确定标准,部分国家和地区还考虑了生态风险^[6]。而我国的《农用地标准》和《建设用地标准》突出了土壤环境管理的风险管控思路,前者同时兼顾了人体健康风险和生态风险,而后者暂未考虑生态风险。

本文在借鉴 HJ766 和 USEPA Method 3050B 分析方法的基础上,通过改进酸种类、配比以及消解方式,采用微波消解法和电感耦合等离子体质谱(ICP-MS)法同时测定土壤中的铬、镍、铜、锌、砷、镉、铅等7种元素。通过分析中国不同地区(内蒙、新疆、青海、陕西、黑龙江、江苏、广东等)的9种土壤与水系沉积物的成分分析标准物质,对两种消解酸体系的测定结果进行对比,以期为解决土壤介质中同一污染物不同监测分析方法之间的可比性、有效性等问题提供基础数据参考。

1 实验部分(Experimental section)

1.1 主要仪器及试剂

电感耦合等离子体质谱仪:美国 Agilent 7900;微波消解仪:美国 CEM Mars 6 Classic;电子分析天平:瑞士 Mettler-Toledo X240 型,最小分度 0.1mg;超纯水处理系统:上海乐枫生物科技公司 Direct-pure UP。

硝酸:优级纯, Fisher Chemical;氢氟酸、双氧水:优级纯, CNW Technologies;盐酸,优级纯,北京化工厂;环境多元素混合有证标准溶液 10.0 mg·L⁻¹, 美国 Agilent;实验用水:超纯水(超纯水处理系统),上海乐枫生物科技公司。分别取一定体积的环境多元素混合有证标准溶液,用 2%的硝酸溶液进行稀释,配制成质量浓度分别为 0、1.0、2.0、5.0、10.0、20.0、50.0、100、500 μg·L⁻¹的标准系列。内标标准使用溶液:对 10.0 μg·L⁻¹的内标标准贮备溶液,用 2%硝酸溶液稀释至 1.0 μg·L⁻¹,内标由蠕动泵管在线加入,内标元素在试样中的质量浓度约为 50 μg·L⁻¹。

土壤成分分析标准物质的认定机构有中国地质科学院地球物理地球化学勘查研究所、黑龙江省环境监测中心站和冶金部天津地质研究院。

1.2 土壤样品的消解与测定

准确称取 0.1 g(精确至 0.0001 g)土壤/沉积物样品,置于微波消解罐中,加入 1 mL 浓盐酸和 5 mL 浓硝酸,1 mL 氢氟酸和 1 mL 双氧水(或者加入 6 mL 浓硝酸和 2 mL 双氧水),将消解罐放入微波消解仪进行消解,设定程序使样品在 10 min 内升高到 180 °C,并在 180 °C 保持 40 min。消解后冷却至室温,小心打开消解罐的盖子,将消解罐放在赶酸仪中(或者不赶酸),150 °C 敞口赶酸,至内溶物近干,冷却至室温后,用水溶解内溶物,然后将溶液转移至 100 mL 容量瓶中,用超

纯水定容至 100 mL,取上清液或者过滤后进行测定。

经过调谐优化的仪器工作条件见表 1.内标的选择原则首先是样品中不含该元素,土壤中含有常用的内标元素 Sc、Ge、In、Tb、Bi 等,而¹⁰³Rh 元素相比含量较低.赵小学等^[7]研究发现采用单一的内标¹⁰³Rh 元素即可实现对土壤复杂基体样品中不同质量段、多金属元素的同时测定.因此,本文选择¹⁰³Rh 为内标元素。

表 1 ICP-MS 的仪器工作条件及参数

Table 1 Condition and parameters of ICP-MS

工作参数 Working parameter	设定值 Set value	工作参数 Working parameter	设定值 Set value
雾化器	石英雾化器	雾化室温度	2 ℃
采样深度	10.0 mm	积分时间	As 0.3 s, Cd 1 s
采样锥	Ni 锥	氧化物	(CeO/Ce) ≤1.5%
RF 功率	1550 W	双电荷	(Ce ²⁺ /Ce) ≤3.0%
RF 匹配	1.80 V	内标元素质量数	¹⁰³ Rh
雾化器流量	1.08 L·min ⁻¹	同位素质量数	⁵² Cr, ⁶⁰ Ni, ⁶³ Cu, ⁶⁶ Zn, ⁷⁵ As, ¹¹¹ Cd, ²⁰⁸ Pb
补偿气流量	0 L·min ⁻¹	He 气流量	4.5 mL·min ⁻¹

1.3 干扰及消除

对 Cr 和 As 进行定量分析时,在 m/z52 和 m/z75 处容易受到多原子离子(比如⁴⁰Ar¹²C⁺、³⁵Cl¹⁶O⁺、⁴⁰Ar³⁵Cl⁺)的干扰,实验中采用八极杆碰撞反应池对干扰进行消除^[8].Pb 在不同介质中同位素比例不同,因而采用干扰方程(206M+207M+208M)校正干扰。

土壤基体效应一般可分为两种类型:抑制、增强效应和由高盐含量引起的物理效应.可采用内标法,补偿基体效应;校准标准和样品基体匹配,使所有样品和标准中的酸度和基体匹配,以消除粘度不同和基体不同引起的传输效率的变化^[9];利用好仪器本身的背景矫正技术,如 IPC-MS 的分离干扰元素、屏蔽技术和碰撞-反应池技术,以求最大程度的降低干扰^[10]。

2 结果与讨论 (Results and discussion)

2.1 两种加酸体系的准确度比较

采用 2 种消解体系和 9 种土壤与沉积物的成分分析标准物质验证准确度,按照 7 种元素含量水平由低到高大致进行了排列,测定结果如图 1 所示.从图 1 可以看出,对于 Cr 和 Pb 元素,除 GBW07409 的 Cr 和 GSS-7 的 Pb 外,硝酸-氢氟酸-盐酸-过氧化氢消解体系的回收率均在 85%—100%的范围,而硝酸-过氧化氢消解体系的回收率则在 45%—100%的范围,硝酸-过氧化氢消解体系的结果明显偏低。

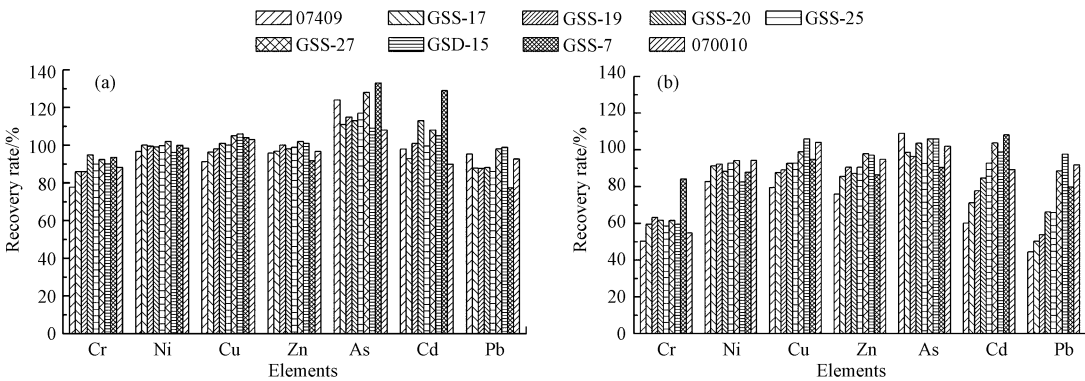


图 1 硝酸-氢氟酸-盐酸-过氧化氢(a)和硝酸-过氧化氢(b)消解体系的结果

Fig.1 Results of nitric acid-hydrofluoric acid-hydrochloric acid-hydrogen peroxide digestion system and nitric acid-hydrogen peroxide digestion system

对于 As,硝酸-氢氟酸-盐酸-过氧化氢消解体系的回收率在 105%—135%,硝酸-过氧化氢消解体系的回收率在 90%—110%,前者的结果略有偏高,推测可能为盐酸引入的氯离子使⁷⁵As⁺容易受到同质量数离子⁴⁰Ar³⁵Cl⁺的干扰^[11],即使采用碰撞反应池也无法完全消除 Cl 对 As 测定的干扰.对于 Cd 元素,受制于土壤中 Cd 含量较低,ICP-MS 的结果可能具有一定的波动性,除 GSS-7 样品,硝酸-氢氟酸-盐酸-过氧化氢消解体系的回收率在 90%—115%;除 GBW07409 样品,硝酸-过氧化氢消解体系的回收率在 70%—110%。

对于 Ni、Cu、Zn 结果,硝酸-氢氟酸-盐酸-过氧化氢消解体系的回收率均在 90%—110%,硝酸-过氧化氢消解体系的回收率在 75%—110%.

2.2 两种加酸体系的偏差比较

采用两种消解体系和 9 种土壤与沉积物的成分分析标准物质验证准确度,硝酸-过氧化氢法对硝酸-氢氟酸-盐酸-过氧化氢法的偏差,结果如图 2 所示.由图 2 可知,大多数偏差结果小于 0,表明硝酸-氢氟酸-盐酸-过氧化氢法测定的全量结果总体大于硝酸-过氧化氢法测定的可溶态元素的结果.Cr 和 Pb 元素的偏差为-53.3%—3.1%,大多数的可溶态元素结果与元素全量结果偏差较大,结合上述准确度内容可知,氢氟酸对 Cr 和 Pb 元素的测定结果影响较大.未加入氢氟酸,则无法破坏硅晶格结构,使包裹在其中的重金属元素 Cr 和 Pb 等难以析出^[12].As 的偏差为-32.0%—-3.5%,盐酸对 As 元素的测定结果具有一定的影响.Cd 的偏差为-38.7%—-0.8%,两种消解方式的回收率结果具有一定的偏差.Ni、Cu 和 Zn 元素的偏差为-20.7%—0.7%,多数偏差结果在-10%—0 之间,氢氟酸或盐酸对 Ni、Cu 和 Zn 的结果影响较小,结合上述内容,表明硝酸-过氧化氢法测定的可溶态元素结果,可以较好地反映出元素全量水平.因此,在土壤中重金属风险评估中,对于 Ni、Cu、Zn、As 和 Cd 元素,采用硝酸-氢氟酸-盐酸-过氧化氢消解体系的测试方法相对偏保守.

2.3 不同地区土壤中重金属结果差异

土壤/沉积物成分分析标准物质的信息如表 2 所示.由表 2 可知,GSS-27 是采集于江苏省张家港长江的沉积物,GSD-15 是采集于内蒙古霍克乞多金属矿区的沉积物,两者同属于水系沉积物.无论是硝酸-过氧化氢法还是硝酸-氢氟酸-盐酸-过氧化氢法,水系沉积物 Pb 元素的回收率均高于其他土壤,且硝酸-过氧化氢法的 Pb 元素的回收率可达 89% 和 98%,说明 Pb 元素与该类沉积物成土母质的结合较为松散,酸提取较为容易.

GBW(E)070010 土壤来自于全国主要矿区,受到人为采矿活动的影响较大,土壤受到采矿废水、废渣及粉尘的污染,Ni、Cu 和 As 元素的总量明显高于其他土壤.对于除 Cr 元素以外的其他 6 种元素,硝酸-过氧化氢法的回收率均在 85%—105% 的范围内,表明污染元素与土壤结合松散,导致矿区土壤中可提取态重金属含量偏高.

GSS-7 是采集于广东徐闻的玄武岩砖红壤,可以发现,两种消解体系的 Cr 和 Pb 元素的偏差均在±10% 以内,硝酸-过氧化氢法的 Cr 和 Pb 元素的回收率可达 84% 和 80%,其他元素的回收率均在 80%—110% 之间.由于石英成分相对其他土壤较少,因此各元素与该土壤结合松散,更容易被硝酸-过氧化氢法提取出来.

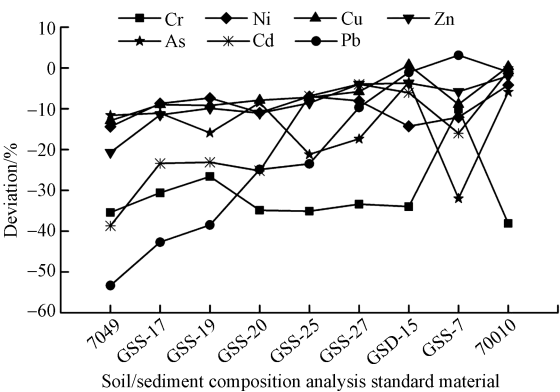


图 2 两种消解体系的偏差

(注:偏差=(硝酸-过氧化氢法测定值-硝酸-氢氟酸-盐酸-过氧化氢法测定值)/硝酸-氢氟酸-盐酸-过氧化氢法测定值)

Fig.2 Deviation of the two digestion systems

表 2 土壤/沉积物成分分析标准物质

Table 2 Soil/sediment composition analysis standard material

国家编号 Country number	编号 Number	样品类型 Sample type	采样地区 Sampling area
GBW07358	GSD-15	水系沉积物	内蒙古霍克乞多金属矿区
GBW07456	GSS-27	水系沉积物	江苏省张家港长江沉积物
GBW07407	GSS-7	土壤	广东徐闻玄武岩砖红壤
GBW07449	GSS-20	土壤	新疆鄯善盐碱土
GBW07446	GSS-17	土壤	内蒙古乌拉特后旗沙化土
GBW07409	07409	土壤	采用黑龙江风砂土、黑土、暗棕壤等 3 种典型的土类
GBW07448	GSS-19	土壤	青海省海晏县棕漠土
GBW07454	GSS-25	土壤	陕西省洛川黄土
GBW(E)070010	070010	土壤	全国主要矿区

GBW07409 是采集于黑龙江的风砂土、黑土、暗棕壤等 3 种典型的土类,具有有机质含量高的特点.结合上述准确度内容可知,其硝酸-过氧化氢法的回收率整体偏低,除无法溶出硅晶格中的 Cr 和 Pb 的元素外,由于该方法未能彻底破坏土壤腐殖质中的碳链结构,Ni、Cu 和 Zn 元素的回收率也偏低,在 75%—85% 的范围内.硝酸-氢氟酸-盐酸-过氧化氢法由于加入了过氧化氢可以更好的破坏有机质,其回收率均在 75%—125% 的范围.

至于 GSS-17—GSS-25,分别属于我国西北部的沙化土、棕漠土、盐碱土和黄土,各元素的回收率表现基本一致,即对

于 Ni、Cu、Zn 和 As 元素,硝酸-过氧化氢法的结果均在 85%—105% 范围内.Cd 元素由于含量过低,两种消解方式的回收率结果具有一定的偏差,可通过增加消解液浓度的方式进行改进.

3 结论 (Conclusion)

(1) 对于 Cr 和 Pb 元素,硝酸-过氧化氢消解体系可溶态元素的结果显著低于元素全量的结果,未加入氢氟酸,难以将硅晶格中的 Cr 和 Pb 析出.

(2) 对于 As 元素,硝酸-氢氟酸-盐酸-过氧化氢消解体系的回收率略有偏高,推测其原因为盐酸引入的氯离子对 ICP-MS 的测定产生了质谱型干扰,因此消解体系应尽量避免引入氯.对于 Cd 元素,受制于土壤中 Cd 含量较低的因素,两种消解体系的回收率结果具有一定的偏差.

(3) 对于 Ni、Cu 和 Zn 的结果,硝酸-过氧化氢消解体系的回收率在 75%—110% 的范围,两种消解体系的偏差较小,硝酸-过氧化氢法测定的可溶态元素的结果可以较好的反映出元素全量的水平.

(4) 对比不同地区土壤的结果可知,除水系沉积物和砖红壤中的 Pb 及砖红壤中的 Cr,土壤中部分 Cr 和 Pb 难以被硝酸-过氧化氢体系消解出来,在环境中处于稳定的状态,因此采用硝酸-过氧化氢体系能更准确的评估 Cr 和 Pb 对环境的危害.而对于有机质含量高的土壤,如东北地区的黑土,建议加入过氧化氢进行消解.

参考文献 (References)

- [1] 田衍,邢书才,杨郡,等.土壤/沉积物中重金属元素分析的前处理技术研究进展[J]. 光谱实验室,2012,29(1): 247-251.
TIAN Y, XING S C, YANG J, et al. Advances in pretreatment techniques for analysis of heavy metal elements in soil/ sediment[J]. Chinese Journal of Spectroscopy Laboratory, 2012, 29(1): 247-251 (in Chinese).
- [2] 刘传娟,刘凤枝,蔡彦明,等.不同前处理方法-ICP-MS 测定土壤中的重金属[J]. 分析实验室,2009,28(z1): 91-94.
LIU C J, LIU F Z, CAI Y M, et al. Determination of heavy metals in soil by different pretreatment methods-ICP-MS[J]. Chinese Journal of Analysis Laboratory, 2009, 28(z1): 91-94 (in Chinese).
- [3] FALCIANI R, NOVARO E, MARCHESINI M. Multi-element analysis of soil and sediment by ICP-MS after a microwave assisted digestion method[J]. Journal of Analytical Atomic Spectrometry, 2000, 15: 561-565.
- [4] 王媛,余全智,肖正龙,等.土壤中重金属监测前处理方法研究[J]. 环境与发展,2019,31(2): 177-179.
WANG Y, YU Z Q, XIAO Z L, et al. Study on pretreatment methods for monitoring heavy metals in soil[J]. Environment and Development, 2019, 31(2): 177-179 (in Chinese).
- [5] 刀谓,霍晓芹,张霖琳,等.我国土壤中主要元素监测技术及难点[J]. 中国环境监测,2018,34(5): 17-26.
DAO X, HUO X Q, ZHANG L L, et al. Over view of main soil element heavy metal monitoring technology and difficulties in China[J]. Environmental Monitoring in China, 2018, 34(5): 17-26 (in Chinese).
- [6] SUN Y M, LI H, GUO G L, et al. Soil contamination in China: Current priorities, defining background levels and standards for heavy metals[J]. Journal of Environmental Management, 2019, 251: 109512.
- [7] 赵小学,赵宗生,陈纯,等.电感耦合等离子体-质谱法内标元素选择的研究[J]. 中国环境监测,2016,32(1): 84-87.
ZHAO X X, ZHAO Z S, CHEN C, et al. Selection of internal standard elements for inductively coupled plasma-mass spectrometry[J]. Environmental Monitoring in China, 2016, 32(1): 84-87 (in Chinese).
- [8] GUO W, HUA S H, ZHANG J Y, et al. Elimination of oxide interferences and determination of ultra-trace silver in soils by ICP-MS with ion-molecule reactions[J]. Science of The Total Environment, 2011, 409(15): 2981-2986.
- [9] 孙婧,马丽,杨兆光,等.混酸微波辅助萃取 ICP-MS 测定不同性质土壤中的重金属元素[J]. 环境化学,2015,34(6): 1057-1063.
SUN J, MA L, YANG Z G, et al. Determination of heavy metal elements in various soils by microwave assisted extraction with acid mixture and ICP-MS[J]. Environmental Chemistry, 2015, 34(6): 1057-1063 (in Chinese).
- [10] 李冰,周剑雄,詹秀春.无机多元素现代仪器分析技术[J]. 地质学报,2011,85(11): 1878-1916.
LI B, ZHOU J X, ZHAN X C, et al. Inorganic multi-element modern instrument analysis technology[J]. Acta Geologica Sinica, 2011, 85(11): 1878-1916 (in Chinese).
- [11] 全继宏,刘真贞,郑明明,等.碰撞池 ICP-MS 测定土壤中的 V、Cr、Mn、Fe[J]. 环境科学与技术,2015,38(6): 524-526.
QUAN J H, LIU Z Z, ZHENG M M, et al. Determination of V, Cr, Mn, Fe in soil by collision cell inductively coupled plasma mass spectrometry[J]. Environmental Science and Technology, 2015, 38(6): 524-526 (in Chinese).
- [12] 王俊伟,钱蜀,李海霞,等.微波消解-ICP-MS 测定土壤和水系沉积物中的重金属[J]. 四川环境,2010,29(6): 40-43.
WANG J W, QIAN S, LI H X, et al. Determination of heavy metals in soils and sediments by microwave-assisted digestion and inductively coupled plasma-mass spectrometry[J]. Sichuan Environment, 2010, 29(6): 40-43 (in Chinese).